

明 細 書

発明の名称：樹脂組成物および成形体

技術分野

[0001] 本発明は、樹脂組成物、および、当該樹脂組成物からなる成形体、より詳しくは、熱可塑性樹脂と無機物とを含む樹脂組成物、成形体およびその用途に関する。

背景技術

[0002] 車両、自動車部品、家庭電化製品、各種機械、建築材料、音響機器をはじめとした構造部材の振動やそれに伴う騒音を防止する目的で、構造部材の表面や内部に制振、防振性を有する材料を塗布したり、張り付けたりすることが行われてきた。特に音響振動板では、弾性率および内部損失を高めるために、制振、防振性を有する材料を用いることが通例である。この制振、防振性を有する材料としては、ゴム、アスファルト、各種の合成樹脂エマルジョンおよびラテックス、あるいは合成樹脂などに金属酸化物、グラファイト、マイカ、カーボンブラック、炭酸カルシウム、タルク、クレー等の粉体あるいは天然または合成繊維を配合したものなどが用いられてきた。

[0003] これら制振材に求められる制振性は、たとえば、貯蔵弾性率 (G') と損失弾性率 (G'') との比 (G''/G') である損失正接 $\tan \delta$ によって評価することができる。そのためその制振材が使用される温度環境下での $\tan \delta$ が高い材料ほど、粘性が強く発揮されるため、振動による応力を吸収しやすく、より高い制振性を発揮する。なお、 $\tan \delta$ は温度によって変化するため、制振材の $\tan \delta$ の最大値（以下「 $\tan \delta$ ピーク値」ともいう。）、および $\tan \delta$ の値が最大となる温度（以下、単に「 $\tan \delta$ ピーク温度」ともいう。）を特定の範囲に調整する技術が開発されている。

[0004] 特許文献1および特許文献2には、4-メチルー1-ペンテン系共重合体を用いてなる、室温で高い $\tan \delta$ ピークを有する材料が開示されており、この材料を、制振、防振部材に適用することも開示されている。

[0005] 一方、熱可塑性樹脂と粉体を配合してなる材料を採用する試みもなされている。そのような材料を採用することで、従来の熱可塑性樹脂だけではなしえなかった強度、重量感、熱伝導性、電気伝導性などが得られる。また、熱可塑性樹脂と粉体を配合してなる材料をシート化することでの合成紙やラベル等への展開も進んでいる。また、熱可塑性樹脂と粉体を配合してなる材料は、構成材料として自然由来の材料を使用することで環境低負荷材料の点で注目されている。例えば特許文献3では、ポリオレフィンと金属酸化物との組成物を採用することで、得られる成形体に対し従来のポリオレフィンには達成できなかった高熱伝導性と重量感を付与すること、および、そのような組成物を食器やタンブラーに適用することが開示されている。また特許文献4、5では、無機物とポリオレフィン樹脂を含む組成物からなる合成紙が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2012-082388号公報

特許文献2：特開2017-132920号公報

特許文献3：WO2017/209215号

特許文献4：特開2001-071378号公報

特許文献5：WO2018/092494号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 前述の特許文献1および2に記載の材料は、室温で高い $\tan \delta$ ピーク値を有するものの、粘性により、成形体表面のべたつきが発生したり射出成形性が悪くなったりするなどの問題が生じることがある。そのため、そのような問題を回避するためには、特許文献1および2に記載の材料を、結晶性ポリオレフィンや熱可塑性エラストマーとの組成物にする必要があり、高い $\tan \delta$ ピークを保持できない課題があった。特許文献3の樹脂組成物でも、高い $\tan \delta$

ピークを保持することや成形体に柔軟性を付与することができない課題があった。また特許文献4，5に記載の発明では、シート成形による薄肉化で成形体の柔軟性はある程度付与でき、シート間のべたつきは抑えられる結果となったが、 $\tan \delta$ ピーク値は低下するため制振性や応力緩和性などは保持できないことがある。

[0008] そこで本発明が解決しようとする課題は、上記従来技術の問題点を解決し、室温で高い応力緩和性、振動吸収性を有しつつも表面べたつきが抑制された樹脂組成物及び成形体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0009] 上記課題を解決するために鋭意検討した結果、熱可塑性樹脂と無機物とを特定の割合で含む特定の樹脂組成物を用いることにより、上記課題が解決されることを見出し、本発明に至ったものである。

[0010] すなわち、本発明の主旨は次の通りである。

[1]

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1) 10～50質量部と、

無機物(B) 50～90質量部(4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)と無機物(B)の合計を100質量部とする)とを含み、且つ、下記要件(a)，(b)を満たすことを特徴とする樹脂組成物(X)：

要件(a)； $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz)の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク温度が、 0°C 以上 60°C 以下である。

[0011] 要件(b)； $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz)の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク値が、 0.8 以上 5.0 以下である。

[0012] [2]

熱可塑性樹脂(A) 10～50質量部と、

無機物 (B) 50～90質量部 (熱可塑性樹脂 (A) と無機物 (B) の合計を100質量部とする) とを含み、且つ、下記要件 (a), (b) を満たすことを特徴とする樹脂組成物 (X) :

要件 (a) ; $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク温度が、 0°C 以上 60°C 以下である。

[0013] 要件 (b) ; $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク値が、 0.8 以上 5.0 以下である。

[0014] [3]

前記4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) が、下記要件 (c) ~ (f) を満たすことを特徴とする前記 [1] に記載の樹脂組成物 (X) :

要件 (c) ; 共重合体 (A-1) は、4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位 (i) と、 α -オレフィン (ただし、4-メチル-1-ペンテンを除く。) から導かれる構成単位 (ii) との合計を100モル%として、当該構成単位 (i) 55～90モル%と、当該構成単位 (ii) 10～45モル%とからなる。

[0015] 要件 (d) ; 共重合体 (A-1) は、示差走査熱量計 (DSC) によって測定される融点 (T_m) が 160°C 以下または観測されない。

要件 (e) ; 共重合体 (A-1) は、 $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク温度が、 15°C 以上 45°C 以下である。

[0016] 要件 (f) ; 共重合体 (A-1) は、 $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク値が、 0.6 以上 5.0 以下である。

[0017] [4]

前記無機物 (B) が、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム

、酸化マグネシウムおよびタルクからなる群より選ばれるいずれか1以上であることを特徴とする、前記〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の樹脂組成物（X）。

[0018] 〔5〕

前記無機物（B）の平均粒子径が0.01 μm ～100 μm であることを特徴とする前記〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の樹脂組成物（X）。

[0019] 〔6〕

前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の樹脂組成物からなる成形体。

〔7〕

前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の樹脂組成物からなるシート。

[0020] 〔8〕

前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の樹脂組成物からなる玩具。

〔9〕

前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の樹脂組成物からなる日用雑貨。

[0021] 〔10〕

前記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の樹脂組成物からなる電子機器筐体。

発明の効果

[0022] 室温で高い応力緩和性、振動吸収性をもちながらも表面べたつきが抑制された樹脂組成物及び成形体を提供する。

発明を実施するための形態

[0023] 以下、本発明の樹脂組成物及び成形体について説明する。

〔樹脂組成物（X）〕

本発明の樹脂組成物（X）は、熱可塑性樹脂（A）と無機物（B）とを含む。

[0024] 本発明の樹脂組成物（X）は、熱可塑性樹脂（A）と無機物（B）とからなるものであっても良く、あるいは、後述するように、熱可塑性樹脂（A）および無機物（B）に加えて、熱可塑性樹脂（A）でも上記無機物（B）で

もないその他の成分をさらに含んでも良い。

[0025] また、本発明の樹脂組成物（X）は、以下の要件（a）および（b）を共に満たす。

要件（a）；

本発明の樹脂組成物（X）は、 $-40\sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s （ 1.6 Hz ）の周波数で動的粘弾性測定して得られる損失正接 $\tan \delta$ がピーク値となる温度が、 0°C 以上 60°C 以下であり、 10°C 以上 50°C 以下であることが好ましく、 20°C 以上 45°C 以下であることがより好ましく、 25°C 以上 43°C 以下であることが特に好ましい。

[0026] 要件（b）；

本発明の樹脂組成物（X）は、上記 $\tan \delta$ のピーク値が 0.8 以上 5.0 以下である。この $\tan \delta$ のピーク値は 0.6 以上 4.5 以下であることが好ましく、 0.8 以上 3.5 以下であることがより好ましい。

[0027] $\tan \delta$ は、動的粘弾性の測定時に得られる貯蔵弾性率（ G' ）および損失弾性率（ G'' ）を用いて、貯蔵弾性率（ G' ）と損失弾性率（ G'' ）との比（ G''/G' ：損失正接）として算出することができる。

[0028] ここで、本発明において、 $-40\sim 150^{\circ}\text{C}$ の範囲で $\tan \delta$ がピーク値（最大値）となる際の温度を、上記 $\tan \delta$ がピーク値となる温度とし、その際の $\tan \delta$ の値を上記 $\tan \delta$ のピーク値とする。なお、上記ピークは、熱可塑性樹脂組成物のガラス転移温度に起因すると考えられる。

[0029] 以下、本発明の樹脂組成物（X）を構成する熱可塑性樹脂（A）および無機物（B）について説明する。

＜熱可塑性樹脂（A）＞

本発明の樹脂組成物（X）は、熱可塑性樹脂（A）を含む。

[0030] ここで、本発明で用いられる熱可塑性樹脂（A）は、本発明の課題を解決できる限り、特に、上記 $\tan \delta$ のピーク温度およびピーク値を有する樹脂組成物（X）を与えることができる限り、特に限定されるものではない。ただ、本発明の典型的な態様において、熱可塑性樹脂（A）は、4-メチルー

1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) またはスチレン系エラストマー (A-2) である。これらのうち、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) が好ましい。

[0031] 以下、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) およびスチレン系エラストマー (A-2) について説明する。

《4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) 》

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) (以下、単に「共重合体 (A-1)」ともいう。) は、以下の要件 (c) ~ (f) を全て満たすことが好ましい。4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、1種単独で、または2種類以上を組み合わせて用いることができる。

[0032] 要件 (c) ;

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位 (i) と、4-メチル-1-ペンテンを除く α -オレフィンから導かれる構成単位 (i i) とを含み、構成単位 (i) と構成単位 (i i) との合計を100モル%としたときに、構成単位 (i) を55モル%以上90モル%以下、構成単位 (i i) を10モル%以上45モル%以下含むことが好ましい。

[0033] ここで、本明細書において、「 α -オレフィンから導かれる構造単位」というときは、 α -オレフィンに対応する構造単位、すなわち、 $-\text{CH}_2-\text{CH}-\text{R}-$ (Rは水素原子またはアルキル基) で表される構造単位を意味する。「4-メチル-1-ペンテンから導かれる構成単位」についても同様に解釈され、4-メチル-1-ペンテンに対応する構造単位 (すなわち、 $-\text{CH}_2-\text{CH}-(\text{CH}_2\text{CH}(\text{CH}_3)_2)-$ で表される構造単位) を意味する。

[0034] 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) を構成する構成単位 (i) の割合の下限値は、55モル%であることが好ましいが、60モル%であることがより好ましく、68モル%であることがさらに好ましい。一方、構成単位 (i) の割合の上限値は、90モル%であることが好

ましいが、86モル%であることがより好ましく、84モル%であることがさらに好ましい。4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)を構成する構成単位(i)の割合が上記下限値以上であると、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)の $\tan \delta$ がピーク値となる温度が室温付近になるため、樹脂組成物の $\tan \delta$ がピーク値となる温度も上述した範囲に調整しやすい。

[0035] 当然ながら、このとき、構成単位(i i)の割合の上限値は、45モル%であることが好ましいが、40モル%であることがより好ましく、32モル%であることがさらに好ましい。一方、構成単位(i i)の割合の下限値は、10モル%であることが好ましいが、14モル%であることがより好ましく、16モル%であることがさらに好ましい。

[0036] ここで、本発明の典型的な態様において、構成単位(i i)を導く α -オレフィン、4-メチル-1-ペンテンを除く炭素原子数2~20の α -オレフィンから選ばれる1種以上である。そのような α -オレフィンの例として、エチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、および1-エイコセンなどを含む炭素原子数2~20（好ましくは炭素原子数2~15、より好ましくは炭素原子数2~10）の直鎖状の α -オレフィン、ならびに、3-メチル-1-ブテン、3-メチル-1-ペンテン、3-エチル-1-ペンテン、4, 4-ジメチル-1-ペンテン、4-メチル-1-ヘキセン、4, 4-ジメチル-1-ヘキセン、4-エチル-1-ヘキセン、および3-エチル-1-ヘキセンなどを含む炭素原子数5~20（好ましくは炭素原子数5~15）の分岐状の α -オレフィンが挙げられる。これらの中でもエチレン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-オクテンが好ましく、エチレン、プロピレンが特に好ましい。構成単位(i i)は、これらのうち1つの化合物から導かれてもよいし、2以上の化合物から導かれてもよい。

[0037] ただし、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)

は、本発明の目的を損なわない程度の少量（たとえば、構成単位（i）と構成単位（ii）との合計を100モル部として10モル部以下）であれば、構成単位（i）および構成単位（ii）のほかに、構成単位（iii）として、4-メチル-1-ペンテンおよび構成単位（ii）を導く α -オレフィンのいずれでもない他のモノマーから導かれる構成単位をさらに含んでもよい。このような他のモノマーの好ましい具体例としては、前記共重合体（A-1）が4-メチル-1-ペンテン・プロピレン共重合体の場合であれば、5-ビニル-2-ノルボルネン、5-エチリデン-2-ノルボルネンなどが挙げられる。

[0038] 要件（d）；

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体（A-1）は、示差走査熱量計（DSC）によって測定される融点（ T_m ）が好ましくは160℃以下または観測されず、より好ましくは140℃以下または観測されず、さらに好ましくは観測されない。このような要件を満たすことによって、本発明の樹脂組成物において無機物との混練性がよくなり、振動吸収性や応力緩和性を向上させることが可能となる。

[0039] 要件（e）；

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体（A-1）は、-40～150℃の温度範囲で、10rad/s（1.6Hz）の周波数で動的粘弾性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク温度が、15℃以上45℃以下であることが好ましい。ここで、前記 $\tan \delta$ ピーク温度の下限値について見ると、前記 $\tan \delta$ ピーク温度は、20℃以上であることがより好ましく、25℃以上であることがさらに好ましい。また、本発明の例示的な対応において、前記 $\tan \delta$ ピーク温度は40℃以下であるが、本願発明の目的が達成できる限り40℃を超えていても構わない。本発明の典型的な対応において、前記 $\tan \delta$ ピーク温度は、20℃以上45℃以下であることがより好ましく、25℃以上45℃以下であることがさらに好ましい。 $\tan \delta$ ピーク温度を上記の温度範囲にすることで、室温での $\tan \delta$ の値をより高め

ることができる。

[0040] 要件 (f) ;

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、 $-40 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の温度範囲で、 10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で動的粘性測定を行って得られる、 $\tan \delta$ ピーク値が、 0.6 以上 5.0 以下であることが好ましく、 1.0 以上 5.0 以下であることがより好ましく、 1.5 以上 5.0 以下であることがさらに好ましく、 2.0 以上 4.0 以下であることが特に好ましい。 $\tan \delta$ ピーク値を上記範囲にすることで、引張や変形の数値に応じて振動吸収性、材料の硬さや追従性を変化させることができる。

[0041] 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、上記要件 (c) ~ (f) に加えて、以下の要件 (g)、(h)、(i) および (j) から選ばれる 1 以上の要件を満たすことが好ましい。

[0042] 要件 (g) ;

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の、デカリン中 135°C で測定した極限粘度 $[\eta]$ は、 0.1 dL/g 以上 5.0 dL/g 以下であることが好ましく、 0.5 dL/g 以上 4.0 dL/g 以下であることがより好ましく、 0.5 dL/g 以上 3.5 dL/g 以下であるさらに好ましい。上記極限粘度 $[\eta]$ が上記範囲である 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、シート状の熱可塑性樹脂組成物への成形が容易である。

[0043] 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の上記極限粘度 $[\eta]$ は、重合による製造中に水素を添加して分子量や重合活性を制御して、上記範囲に調整することができる。

[0044] 上記極限粘度 $[\eta]$ は、 135°C でデカリン中に異なる量の熱可塑性樹脂組成物を溶解させたときの、それぞれのポリマーの単位濃度 c あたりの粘度増加率 η_{sp} (すなわち η_{sp}/c) を求めて還元粘度 η_{red} とし、 η_{red} をポリマーの単位濃度 c がゼロになるように外挿して、求めることができる。

[0045] 要件 (h) ;

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) により測定される重量平均分子量 (M_w) と数平均分子量 (M_n) との割合 (分子量分布: M_w/M_n) は、1.0以上3.5以下であることが好ましく、1.2以上3.0以下であることがより好ましく、1.5以上2.8以下であることがさらに好ましい。上記 M_w/M_n が上記範囲である4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) は、低分子量、低立体規則性ポリマーによる成形性の低下が生じにくく、シート状の熱可塑性樹脂組成物への成形が容易である。

[0046] また、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) により測定される重量平均分子量 (M_w) は、ポリスチレン換算で、500以上10,000,000以下であることが好ましく、1,000以上5,000,000以下であることがより好ましく、1,000以上2,500,000以下であることがさらに好ましい。

[0047] 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の M_w/M_n および M_w は、たとえばメタロセン触媒を使用することで、上記範囲に調整することができる。

上記 M_w および M_w/M_n は、たとえば、液体クロマトグラフとして Waters 製 ALC/GPC 150-C plus 型 (示唆屈折計検出器一体型) を用い、カラムとして東ソー株式会社製 GMH6-HT $\times$ 2 本および GMH6-HTL $\times$ 2 本を直列接続し、移動相媒体として o -ジクロロベンゼンを用い、流速 1.0 ml/分、140 $^{\circ}$ C で測定して得られるクロマトグラムを、標準ポリスチレンサンプルを使用した検量線を用いて解析して、求めることができる。

[0048] 要件 (i) ;

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1) の密度 (

JIS K 7112にて測定)は、好ましくは $870 \sim 830 \text{ kg/m}^3$ 、より好ましくは $865 \sim 830 \text{ kg/m}^3$ 、さらに好ましくは $855 \sim 830 \text{ kg/m}^3$ である。なお、測定条件等の詳細は、後述する実施例の欄に記載のとおりである。

[0049] 密度は共重合体(A-1)のコモノマー組成比によって適宜変えることができ、密度が上記範囲内にある共重合体(A-1)は、軽量のシートを製造する上で有利である。

要件(j)；

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)のメルトフローレート(MFR; Melt Flow Rate)(ASTM D 1238にて 230°C で 2.16 kg の荷重にて測定)は、好ましくは $4.0 \sim 30 \text{ g/10 min}$ 、より好ましくは $7.0 \sim 15 \text{ g/10 min}$ 、さらに好ましくは $7.0 \sim 13 \text{ g/10 min}$ である。メルトフローレートが上記範囲内にある共重合体(A-1)は、成形加工時に良好なペレット及びシート、成形体を製造する上で有利である。

[0050] 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)の特に好ましい形態は、前記要件(c)～(f)に加えて、更に上記要件(g)を満たし、とりわけ好ましい態様においては、(c)～(g)の要件に加えて、更に要件(h)、(i)および(j)から選ばれる1以上、好ましくは2以上、特に好ましくは全てを満たしている。

[0051] 《4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)の製造方法》

前記共重合体(A-1)の製造方法は、特に限定されないが例えば、4-メチル-1-ペンテンと上述した「構成単位(ii)を導く α -オレフィン」とをマグネシウム担持型チタン触媒またはメタロセン触媒などの適当な重合触媒存在下で重合することにより得ることができる。

[0052] ここで、本発明で用いることのできる重合触媒として、従来公知の触媒、例えばマグネシウム担持型チタン触媒、国際公開第01/53369号、国

際公開第01/27124号、特開平3-193796号公報あるいは特開平2-41303号公報、国際公開第2011/055803号、国際公開第2014/050817号等に記載のメタロセン触媒などが好適に用いられる。

[0053] 重合は、溶解重合および懸濁重合などを含む液相重合法、ならびに気相重合法などから適宜選択して行うことができる。

液相重合法では、液相を構成する溶媒として不活性炭化水素溶媒を用いることができる。上記不活性炭化水素の例には、プロパン、ブタン、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ドデカン、および灯油などを含む脂肪族炭化水素、シクロペンタン、シクロヘキサン、メチルシクロペンタン、およびメチルシクロヘキサンなどを含む脂環族炭化水素、ベンゼン、トルエン、およびキシレンなどを含む芳香族炭化水素、ならびにエチレンクロリド、クロロベンゼン、ジクロロメタン、トリクロロメタン、およびテトラクロロメタンなどを含むハロゲン化炭化水素、ならびにこれらの混合物などが含まれる。

[0054] また、液相重合法では、上記構成単位(i)～構成単位(iii)を導くモノマー自身を溶媒とする塊状重合とすることもできる。

なお、上記構成単位(i)～構成単位(iii)を導くモノマーの共重合を段階的に行うことにより、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1)を構成する構成単位(i)～構成単位(iii)の組成分布を適当に制御することもできる。

[0055] 重合温度は、-50℃以上200℃以下が好ましく、0℃以上100℃以下がより好ましく、20℃以上100℃以下がさらに好ましい。

重合圧力は、常圧以上10MPaゲージ圧であることが好ましく、常圧以上5MPaゲージ圧であることがより好ましい。

[0056] 重合の際に、生成するポリマーの分子量や重合活性を制御する目的で水を添加してもよい。添加される水の量は、上記構成単位(i)～構成単位(iii)を導くモノマーの合計量1kgに対して、0.001NL以上1

O O N L 以下程度が適当である。

[0057] 《スチレン系エラストマー（A-2）》

スチレン系エラストマー（A-2）としては、硬質部（または結晶部）となるポリスチレンブロックと、軟質部（または非晶部）となるジエン系モノマーブロックとのブロック共重合体が挙げられ、硬質部は軟質部の両末端にあってもよい。スチレン系エラストマー（A-2）としては、スチレン・ブタジエン・スチレン共重合体（SBS）、水添スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体（HSBR）、スチレン・エチレン・プロピレン・スチレンブロック共重合体（SEPS）、スチレン・エチレン・ブテン・スチレンブロック共重合体（SEBS）、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体（SIS）、スチレン・イソブチレン・スチレン共重合体（SIBS）、スチレン・イソブチレン共重合体（SIB）、スチレン・エチレン・ブテン・スチレン・スチレン共重合体（SEBSS）などを例示することができる。スチレン系エラストマーは、1種単独で、または2種類以上を組み合わせ用いられる。

[0058] 水添スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体の具体例としては、JSR株式会社から商品名：ダイナロン（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。

スチレン・エチレン・プロピレン・スチレンブロック共重合体は、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体（SIS）を水素添加してなるものである。SISの具体例としては、JSR株式会社から商品名：JSR SIS（登録商標）として、株式会社クラレから商品名：ハイブラー（登録商標）、またはシェル株式会社から商品名：クレイトンD（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。

[0059] また、SEPSの具体例としては、株式会社クラレから商品名：セプトン（登録商標）、またはシェル株式会社から商品名：クレイトン（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。

[0060] また、SEBSの具体例としては、旭化成株式会社から商品名：タフテッ

ク（登録商標）、またはクレイトンポリマー合同会社から商品名：クレイトン（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。スチレン・エチレン・ブテン・スチレン・スチレン共重合体の具体例としては、軟質部にもスチレンを含む構造を取っており具体例としては、旭化成株式会社 S. O. E.（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。

[0061] また、S I B、S I B S の具体例としては、株式会社カネカから商品名：シブスター（登録商標）として市販されているものなどが挙げられる。

<無機物（B）>

本発明の樹脂組成物（X）は、上記熱可塑性樹脂（A）に加えて無機物（B）をも含む。本発明の樹脂組成物（X）は、無機物（B）をも含むことにより、高い $\tan \delta$ ピークとシートとしたときにおけるシート間のべたつきの少なさを両立させることができる。

[0062] 無機物（B）は、無機化合物であれば特に限定はなく、公知のものが利用できる。無機物（B）の例として、カーボンブラックまたはグラファイトもしくはシランカップリング剤などにより表面処理が施されたカーボンブラック、微粉ケイ酸、シリカ（煙霧質シリカ、沈降性シリカ、珪藻土および石英などを含む）、アルミナ、酸化鉄、フェライト、酸化マグネシウム、酸化チタン、三酸化アンチモン、酸化ジルコニウム、酸化バリウムおよび酸化カルシウムなどを含む酸化物系フィラー、水酸化アルミニウムおよび水酸化マグネシウムなどを含む水酸化物系フィラー、珪酸アルミニウム（クレー）、珪酸マグネシウム（タルク）、マイカ、カオリン、珪酸カルシウム、ガラス繊維、ガラスフレーク、ガラスビーズなどを含む珪酸塩系フィラー、珪藻土および石灰岩などを含む堆積岩系フィラー、モンモリロン石（モンモリロナイト）、マグネシアンモンモリロン石、テツモンモリロン石、テツマグネシアンモンモリロン石、バイデライト、アルミニアンバイデライト、ノントロン石、アルミニアンノントロナイト、サポー石（サポナイト）、アルミニアンサポー石、ヘクトライト、ソーコナイト、スチーブンサイト、およびベントナイトなどを含む粘土鉱物系フィラー、フェライト、鉄およびコバルトな

どを含む磁性系フィラー、銀、金、銅およびこれらの合金などを含む導電性フィラー、窒化アルミニウム、窒化ホウ素、シリコンカーバイドなどを含む熱伝導性フィラー、硫酸アルミニウム、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、硫酸カルシウムなどを含む硫酸塩系フィラー、亜硫酸カルシウムなどを含む亜硫酸塩系フィラー、炭酸カルシウム、塩基性炭酸マグネシウム、ドロマイトなどを含む炭酸塩系フィラー、チタン酸バリウム、チタン酸カリウムなどを含むチタン酸塩系フィラーなどが含まれる。

[0063] 無機物（B）としては、シリカ、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、および、タルクが好ましく、硫酸マグネシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、酸化マグネシウムおよび、タルクがより好ましく、価格、性能、取扱い性、供給安定性等のバランスの点から、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、および、タルクが最も好ましい。

[0064] これらの無機物（B）は、1種単独で用いてもよく、あるいは、2種以上を組み合わせ用いてもよい。

無機物（B）の粒径は熱可塑性樹脂（A）との加工性の点から、好ましくは $0.01\mu\text{m}\sim 100\mu\text{m}$ 、より好ましくは $0.01\mu\text{m}\sim 80\mu\text{m}$ 、さらに好ましくは $0.01\mu\text{m}\sim 50\mu\text{m}$ である。無機物の粒径（平均粒子径）は、レーザー回折式粒度分布測定装置で測定した、積算%の分布曲線から得られる50%粒子径（ d_{50} ）である。

[0065] <熱可塑性樹脂（A）と無機物（B）との割合>

本発明の樹脂組成物（X）が含有する熱可塑性樹脂（A）と無機物（B）との質量比（熱可塑性樹脂（A）の質量／無機物（B）の質量、以下、単に「（A）／（B）」ともいう。）は、 $10/90\sim 50/50$ である。言い換えると、本発明の樹脂組成物（X）において、熱可塑性樹脂（A）と無機物（B）との合計を100質量部としたときに、熱可塑性樹脂（A）の含有量は10～50質量部であり、無機物（B）の含有量は50～90質量部である。本発明の効果をより好適に奏させる観点からは、

熱可塑性樹脂（Ａ）の含有量は、

下限側は、好ましくは１５質量部以上、より好ましくは２０質量部以上、よりさらに好ましくは２５質量部以上、特に好ましくは２８質量部以上であり、

上限側は、好ましくは４９質量部以下、より好ましくは４８質量部以下、よりさらに好ましくは４５質量部以下、特に好ましくは４４質量部以下である。特に、樹脂組成物（Ｘ）における熱可塑性樹脂（Ａ）の含有量が一定量以下であると、樹脂組成物（Ｘ）を成形する際の収縮が少なく、引張弾性率が高くなる傾向にある。また、熱可塑性樹脂（Ａ）の含有量が一定の範囲内、特に、一定量以上であると、樹脂組成物（Ｘ）をシートとしたときに、シート間のべたつきを抑制できる傾向にある。

[0066] 一方、無機物（Ｂ）の含有量は、

上限側は、好ましくは５１質量部以上、より好ましくは５２質量部以上、よりさらに好ましくは５５質量部以上、特に好ましくは５６質量部以上であり、

下限側は、好ましくは８５質量部以下、より好ましくは８０質量部以下、よりさらに好ましくは７５質量部以下、特に好ましくは７２質量部以下である。

[0067] 上記の質量比を熱可塑性樹脂（Ａ）１００質量部当たりの無機物（Ｂ）の量に換算すると、本発明の樹脂組成物（Ｘ）を構成する無機物（Ｂ）の量は、熱可塑性樹脂（Ａ）１００質量部に対して、１００～９００質量部、好ましくは１００～５６７質量部、より好ましくは１００～４００質量部、さらに好ましくは１２２～３００質量部である。

[0068] ここで、熱可塑性樹脂（Ａ）が２種以上用いられる場合、熱可塑性樹脂（Ａ）の合計量が１００質量部である。また、無機物（Ｂ）が２種以上用いられる場合、無機物（Ｂ）の合計量を以て上記「無機物（Ｂ）の量」とする。

[0069] ＜その他の成分＞

本発明の樹脂組成物（Ｘ）は、上記熱可塑性樹脂（Ａ）と上記無機物（Ｂ）

）とを含む。

ここで、本発明の1つの態様において、樹脂組成物（X）は、上記熱可塑性樹脂（A）と上記無機物（B）とからなる。ただ、本発明の樹脂組成物（X）は、上記熱可塑性樹脂（A）および上記無機物（B）に加えて、上記熱可塑性樹脂（A）でも上記無機物（B）でもないその他の成分（以下「その他の成分」）をさらに含んでも良い。本発明の樹脂組成物（X）に含まれる「その他の成分」の例として、下記で後述するその他の重合体、および、添加剤が挙げられる。

[0070] 本発明の樹脂組成物（X）に含まれる「その他の成分」の含有量は、本発明の樹脂組成物（X）の全体に対して25質量%以下、例えば25質量%未満、であることが好ましい。ここで、「その他の成分」が2種以上用いられる場合、「その他の成分」の合計の含有量が、本発明の樹脂組成物（X）の全体に対して25質量%以下、例えば25質量%未満、であることが好ましいことになる。

[0071] 本発明の樹脂組成物（X）が「その他の成分」を含む場合、上記熱可塑性樹脂（A）と上記無機物（B）との合計量は、樹脂組成物（X）の全体に対して75質量%以上100質量%未満であることが好ましい。

[0072] ≪その他の重合体≫

本発明の樹脂組成物（X）は、本発明の効果を損なわない範囲で、4-メチルー1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体（A-1）またはスチレン系エラストマー（A-2）に該当しないその他の重合体（以下「その他の重合体」）をさらに含んでもよい。

[0073] 「その他の重合体」の例として、従来公知である、低密度、中密度、高密度ポリエチレン、高圧法低密度ポリエチレン、アイソタクティックポリプロピレン、シンジオタクティックポリプロピレン、ポリ1-ブテン、ポリ4-メチルー1-ペンテン、ポリ3-メチルー1-ブテン、環状オレフィン共重合体、塩素化ポリオレフィン、熱可塑性ポリウレタン、ポリオレフィン系エラストマー、ポリスチレン系エラストマー、ポリエステル系エラストマー、

ポリアミド系エラストマーに代表される樹脂が挙げられる。これらの樹脂は 1 種単独で用いられてもよく、2 種以上を組み合わせ用いてもよい。

[0074] これらの樹脂の配合量は、熱可塑性樹脂（A）100質量部に対して好ましくは0～100質量部、より好ましくは0.1～80質量部、特に好ましくは0.3～50質量部である。ここで、樹脂組成物（X）を製造する際には、これらの樹脂は後述する添加剤を含む組成物の形態で用いられてもよいが、その場合の樹脂の配合量は、この組成物の質量から添加剤の質量を差し引いてなる質量が基準となる。

[0075] また、「その他の重合体」は、未変性の重合体に限られず、変性重合体であっても良い。このことから、本発明の樹脂組成物（X）は、熱可塑性樹脂（A）に高い含有率の無機物（B）を混練するのが容易にする為に変性ポリオレフィン系ワックス（C）を含めてもよい。この変性ポリオレフィン系ワックス（C）を用いることにより、熱可塑性樹脂（A）中での無機物（B）の凝集が抑制されるので混練するのが容易になると考えられる。また、熱可塑性樹脂（A）に高い含有率の無機物（B）を混練するのが容易になると考えられる。

[0076] 変性ポリオレフィン系ワックス（C）の種類は特に限定されないが、変性ポリエチレン系ワックス、変性ポリプロピレン系ワックスが好ましく変性ポリエチレン系ワックスがより好ましい。

[0077] 変性ポリオレフィン系ワックス（C）は、公知の方法で製造することが出来る。例えば、無溶剤あるいは溶剤中で低分子量エチレン系重合体に不飽和カルボン酸またはその誘導体をラジカル反応で付加する方法や、ルイス酸の存在下で付加する方法や、高温下で付加する方法が挙げられる。反応温度は20℃～300℃であり、特に120℃～250℃が好ましい。低分子量エチレン系重合体の融点は120℃程度なので、反応温度を120℃以上とすることが、反応系を均一にする意味で好ましい。

[0078] 不飽和カルボン酸としては反応性二重結合を有し、かつカルボン酸基を有する化合物であれば特に制限されず、使用可能な化合物として、公知の不飽

和カルボン酸が挙げられる。また、不飽和カルボン酸の誘導体としては反応性二重結合を有し、かつカルボン酸基から誘導されうる基を有する化合物であれば特に制限されず、例えば、不飽和カルボン酸の無水物、エステル、酸ハライド、アミドおよびイミド等が挙げられる。

[0079] 不飽和カルボン酸としては、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、クロトン酸、イソクロトン酸等の不飽和モノカルボン酸、およびマレイン酸、フマル酸、テトラヒドロフタル酸、イタコン酸、シトラコン酸、ノルボルネンジカルボン酸、ナジック酸エンドシスービスクロ〔2，2，1〕ヘプトー5－エンー2，3－ジカルボン酸)等の不飽和ジカルボン酸が挙げられる。不飽和カルボン酸を用いることによって、カルボン酸基を有する変性炭化水素樹脂が得られる。

[0080] 不飽和カルボン酸の無水物としては、上記不飽和ジカルボン酸の無水物が使用可能である。その具体例としては、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、テトラヒドロ無水フタル酸、無水ナジック酸エンドシスービスクロ〔2，2，1〕ヘプトー5－エンー2，3－ジカルボン酸無水物)等が挙げられる。不飽和カルボン酸の無水物を用いることによって、無水カルボン酸基を有する変性炭化水素樹脂が得られる。特に無水マレイン酸が好ましい。

[0081] 不飽和カルボン酸のエステルとしては、上記不飽和カルボン酸のアルキルエステル、ヒドロキシアルキルエステル、グリシジルエステルが使用可能である。具体例としては、マレイン酸モノメチル、マレイン酸ジメチル、グリシジルマレエート、ヒドロキシル(メタ)アクリレート、ヒドロキシプロピル(メタ)アクリレート、グリシジル(メタ)アクリレート等が挙げられる。不飽和カルボン酸のエステルを用いることによって、カルボン酸エステル基を有する変性炭化水素樹脂が得られる。

[0082] 不飽和カルボン酸のハライドの具体例としては、塩化マレニル、ジクロロマレイン酸無水物($C_4Cl_2O_3$)等が挙げられる。不飽和カルボン酸のハライドを用いることによって、ハロゲン原子含有カルボン酸基を有する変性炭化

水素樹脂が得られる。

- [0083] 不飽和カルボン酸のアミドの具体例としては、スルアミド、フタアミド、マレアミド等が挙げられる。不飽和カルボン酸のアミドを用いることによって、アミド基を有する変性炭化水素樹脂が得られる。
- [0084] 不飽和カルボン酸のイミドの具体例としては、マレイミド、フタイミド、スルイミド等が挙げられる。不飽和カルボン酸のイミドを用いることによって、イミド基を有する変性炭化水素樹脂が得られる。
- [0085] 変性ポリオレフィン系ワックス (C) の酸価は、好ましくは $1 \sim 100 \text{ mg-KOH/g}$ 、より好ましくは $10 \sim 90 \text{ mg-KOH/g}$ である。変性ポリオレフィン系ワックス (C) のゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) で測定したポリスチレン換算の数平均分子量 (M_n) は、好ましくは $400 \sim 20000$ である。
- [0086] 変性ポリオレフィン系ワックス (C) の配合量は、熱可塑性樹脂 (A) 100 質量部に対して好ましくは $0 \sim 20$ 質量部、より好ましくは $0.1 \sim 15$ 質量部、特に好ましくは $0.3 \sim 10$ 質量部である。
- [0087] 《添加剤》
- 上記樹脂組成物 (X) は、必要に応じて、公知の添加剤をさらに含んでもよい。
- 添加剤としては、例えば、耐候性安定剤、耐熱安定剤、紫外線吸収剤、赤外線吸収剤、帯電防止剤、スリップ防止剤、アンチブロッキング剤、防曇剤、滑剤、顔料、染料、可塑剤、老化防止剤、塩酸吸収剤、酸化防止剤、結晶核剤、防黴剤、抗菌剤、難燃剤、有機充填剤、および軟化剤などが挙げられるが、これらに限定されない。これらの添加剤は単独で使用してもよく、複数を併用してもよい。
- [0088] 軟化剤の例には、プロセスオイル、潤滑油、パラフィン、流動パラフィン、ポリエチレンワックス、ポリプロピレンワックス、石油アスファルトおよびワセリンなどを含む石油系物質、コールタールおよびコールタールピッチなどを含むコールタール類、ヒマシ油、アマニ油、ナタネ油、大豆油および

椰子油などを含む脂肪油、トール油、蜜ロウ、カルナウバロウおよびラノリンなどを含むロウ類、リシノール酸、パルミチン酸、ステアリン酸、12-水酸化ステアリン酸、モンタン酸、オレイン酸およびエルカ酸などを含む脂肪酸またはその金属塩、石油樹脂、クマロンインデン樹脂およびアタクチックポリプロピレンなどを含む合成高分子、ジオクチルフタレート、ジオクチルアジペートおよびジオクチルセバケートなどを含むエステル系可塑剤、マイクロクリタリンワックス、液状ポリブタジエンまたはその変性物もしくは水添物、ならびに液状チオコールなどを含む公知の軟化剤が含まれる。

[0089] 軟化剤としては、芳香族カルボン酸エステル（フタル酸ジブチル等）、脂肪族カルボン酸エステル（メチルアセチルリシノレート等）、脂肪族ジアルボン酸エステル（アジピン酸-プロピレングリコール系ポリエステル等）、脂肪族トリカルボン酸エステル（クエン酸トリエチル等）、リン酸トリエステル（リン酸トリフェニル等）、エポキシ脂肪酸エステル（ステアリン酸エポキシブチル等）、石油樹脂等が挙げられる。

[0090] 離型剤としては、高級脂肪酸の低級（C1～4）アルコールエステル（ステアリン酸ブチル等）、脂肪酸（C4～30）の多価アルコールエステル（硬化ヒマシ油等）、脂肪酸のグリコールエステル、流動パラフィン等が挙げられる。

[0091] 酸化防止剤としては、フェノール系（2, 6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェノール等）、多環フェノール系（2, 2'-メチレンビス（4-メチル-6-tert-ブチルフェノール）等）、リン系（テトラキス（2, 4-ジ-tert-ブチルフェニル）-4, 4-ビスフェニレンジホスフォネート等）、アミン系（N, N-ジイソプロピル-p-フェニレンジアミン等）の酸化防止剤が挙げられる。ここで、後述する実施例で用いられている3-（4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル）プロピオン酸n-オクタデシルは、フェノール系酸化防止剤に該当する。

[0092] 難燃剤の例には、ポリリン酸アンモニウム、エチレンビストリス（2-シアノエチル）ホスフォニウムクロリド、トリス（トリブロモフェニル）ホス

フェート、トリス（トリブロモフェニル）ホスフェート、トリス（3-ヒドロキシプロピル）ホスフィンオキシド等のリン酸エステル及びその他のリン化合物、塩素化パラフィン、塩素化ポリオレフィン、パークロロシクロペンタデカン等の塩素系難燃剤、ヘキサブロモベンゼン、エチレンビスジブロモノルボルナンジカルボキシイミド、エチレンビステトラブロモフタルイミド、テトラブロモビスフェノールA誘導体、テトラブロモビスフェノールS、およびテトラブロモジペンタエリスリトール等の臭素系難燃剤、ならびにこれらの混合物が含まれる。

[0093] 紫外線吸収剤としては、ベンゾトリアゾール系、ベンゾフェノン系、サリチル酸系、アクリレート系等が挙げられる。

抗菌剤としては、4級アンモニウム塩、ピリジン系化合物、有機酸、有機酸エステル、ハロゲン化フェノール、有機ヨウ素等が挙げられる。

[0094] 界面活性剤としては非イオン性、アニオン性、カチオン性または両性の界面活性剤を挙げることができる。非イオン性界面活性剤としては、高級アルコールエチレンオキシド付加物、脂肪酸エチレンオキシド付加物、高級アルキルアミンエチレンオキシド付加物、ポリプロピレングリコールエチレンオキシド付加物等のポリエチレングリコール型非イオン界面活性剤、ポリエチレンオキシド、グリセリンの脂肪酸エステル、ペンタエリスリトールの脂肪酸エステル、ソルビットもしくはソルビタンの脂肪酸エステル、多価アルコールのアルキルエーテル、アルカノールアミンの脂肪族アミド等の多価アルコール型非イオン性界面活性剤などが挙げられ、アニオン性界面活性剤としては、例えば、高級脂肪酸のアルカリ金属塩等の硫酸エステル塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、アルキルスルホン酸塩、パラフィンスルホン酸塩等のスルホン酸塩、高級アルコールリン酸エステル塩等のリン酸エステル塩などが挙げられ、カチオン性界面活性剤としては、アルキルトリメチルアンモニウム塩等の第4級アンモニウム塩などが挙げられる。両性界面活性剤としては、高級アルキルアミノプロピオン酸塩等のアミノ酸型両面界面活性剤、高級アルキルジメチルベタイン、高級アルキルジヒドロキシエチルベタイン

等のベタイン型両性界面活性剤などが挙げられる。

[0095] 帯電防止剤としては、上記の界面活性剤、脂肪酸エステル、高分子型帯電防止剤が挙げられる。脂肪酸エステルとしてはステアリン酸やオレイン酸のエステルなどが挙げられ、高分子型帯電防止剤としてはポリエーテルエステルアミドが挙げられる。

[0096] 顔料としては、無機含量（酸化チタン、酸化鉄、酸化クロム、硫化カドミウム等）、有機顔料（アゾレーキ系、チオインジゴ系、フタロシアニン系、アントラキノン系）が挙げられる。染料としてはアゾ系、アントラキノン系、トリフェニルメタン系等が挙げられる。これら顔料および染料の添加量は、特に限定されないが、前記共重合体（A）100質量部に対して、合計で、通常5質量部以下、好ましくは0.1～3質量部である。

[0097] スリップ剤としては、ワックス（カルナバロウワックス等）、高級脂肪酸（ステアリン酸等）、高級脂肪酸塩（ステアリン酸カルシウム等）、高級アルコール（ステアリルアルコール等）、高級脂肪酸アミド（ステアリン酸アミド、エルカ酸アミド等）等が挙げられる。

[0098] 上記の各種添加剤の添加量は、本発明の目的を損なわない範囲内で用途に応じて、特に限定されないが、前記熱可塑性樹脂（A）100質量部に対して、それぞれ、0.01～30質量部であることが好ましい。

[0099] <樹脂組成物（X）の製造方法>

本発明の樹脂組成物（X）の製造方法には特に限定はなく、例えば従来公知の製造方法が使用できる。各成分を熔融混練することにより組成物を製造する熔融混練法を採用することが好ましい。その熔融混練方法については、特に制限はなく、ニーダー、ロールミル、バンバリーミキサー、単軸または二軸押出機等の通常使用されている公知の混合機を用いて、例えば180～250℃下で熔融混練後、造粒あるいは粉碎する方法を採用することができる。それらの中でも混合性や生産性の観点から、二軸押出機の使用が好ましい。該方法により、各成分および添加剤が均一に分散混合された高品質の樹脂組成物ペレットを得ることができる。なお、無機物（B）は、熱可塑性樹

脂（A）等の樹脂成分と予め混合したマスターバッチの形態で用いてもよい。

[0100] 〔成形体〕

本発明の成形体は、上記樹脂組成物（X）からなり、その例として、シート、玩具、日用雑貨、および、電子機器筐体が挙げられる。

[0101] 本発明の成形体の製造方法(成形方法)には特に限定はなく、例えば従来公知の製造方法が使用できる。好適に使用される製造方法の例として、押出シート成形、圧縮成形、射出成形、フィラメント紡糸、および3Dプリンターによる溶融押出積層が挙げられる。

[0102] 本発明の例示的且つ好適な実施形態において、前記製造方法は射出成形である。射出成形によって上記樹脂組成物（X）を加工することで、上記樹脂組成物（X）を含む本実施形態の成形体を好適に得ることが可能である。

[0103] 例えば、一般的なTダイ押出成形機で成形することにより得られる。例えば一軸押出機にてシリンダー温度170～250℃およびキャストロール温度0～70℃で成形を行ってシートを形成する。シートの厚さは、その使用用途にもよるが、通常5～1000μm、好ましくは30～200μmであると、シートの生産性に優れ、シートの成形時にピンホールが生じることがなく、十分な強度も得られることから好ましい。また、シート表面にはエンボス加工を施してもよく、シート成形時または成形後に延伸してもよい。さらに、成形して得られたシートは樹脂の融点未満の温度でのアニーリング処理を行ってもよい。

[0104] 例えば、樹脂組成物を溶融したものを紡糸口金に通して押出すことにより、モノフィラメント、マルチフィラメント、フラットヤーン、カットファイバー、不織布として製造することにより得ることができる。モノフィラメント、マルチフィラメント、フラットヤーンを製造する際の溶融紡糸加工における溶融温度は、共重合体（A）の融点に応じて、適宜選択することができるが、180～280℃の範囲であることが好ましく、より好ましい範囲は、180～230℃である。溶融温度が上記の範囲内にあると、共重合体（

A) の過度な熱分解を抑制でき、口金から吐出された繊維状ストランドの伸長粘度が十分に低下するため、機械的強度に優れ、紡糸加工性が良好な繊維を得ることができる。このようにして得られた繊維は、さらに延伸してもよい。この延伸の程度は、例えば共重合体 (A) に少なくとも一軸方向の分子配向が有効に付与される程度に行えば、弾性率や強度を向上させることができる。延伸倍率は、通常 1.05 ~ 10.0 倍、好ましくは 1.1 ~ 7.0 倍、より好ましくは 1.2 ~ 6.0 倍である。

[0105] <用途>

本発明の樹脂組成物からなる成形体は、高い応力緩和性、振動吸収性に加えゆっくり緩和する特長を持つため、従来公知の用途である、自動車用資材、衣類用資材、衛生用資材、建築用資材、シューズ用資材、スポーツ用資材、レジャー用資材、産業用資材などの用途に用いることができる。

[0106] 本発明の樹脂組成物から得られる成形体は、形状記憶性、保形性を有しつつ高い熱伝導性を持つため、例えば家庭用品等の種々の分野で用いることができる。具体的には、食品等を入れる容器、フォークやナイフ、スプーン、皿等の食器等が挙げられる。これらは射出成形により簡便に成形でき、熱伝導性が高いので内容物の温冷感を感じやすく、重量感を得られる点で、陶磁器に代わる食器や容器として非常に有用である。

[0107] また、陶磁器を用いる他の用途、例えばランプシェードや花瓶等の日用雑貨、特定の音響スピーカー（高級スピーカー等）の構造材、洗面台や便器等の水廻り製品等への展開も可能である。陶磁器を用いる用途以外でも、重量感や安定感を付与できる特徴を活かして、例えばプラモデル等の模型・玩具用途、机や椅子等の家具用途、ピアノの鍵盤等の楽器用途、タイル、人工大理石代替品、建材等の建築用途等にも展開が可能である。また、温熱感や成形性を利用して 3D プリンターのフィラメントとしても好適である可能性がある。

[0108] その他にも、意匠性、安定感、触感などの特徴を生かした各種のボトルやジャーなどの容器を挙げることが出来る。より具体的には、蓋付き容器（エ

アレス容器などを含む）、（化粧用）コンパクト、（化粧用）パレットやボトルなどの形状の容器を挙げることが出来る。

- [0109] さらに本発明の樹脂組成物（X）から得られる成形体は、高い熱伝導性が要求される用途における放熱部材としても有用である。例えば、高い熱伝導性が要求される電子部品、ノートパソコンやモバイル機器等の各種電子機器における放熱シート等の放熱部材として非常に有用である。また、本発明の熱伝導性組成物をノートパソコンやモバイル機器等の各種電子機器の筐体の一部あるいは全部に適用して、放熱シートと組み合わせて用いれば、電子機器の放熱性能を更に高めることが期待できる。さらに、ノートパソコンやモバイル機器等の各種電子機器の筐体の一部に本発明の熱伝導性組成物を使用して、それ以外の部分、例えば操作中に手が接触することが多い箇所には、金属酸化物含有率を低減した材料もしくは金属酸化物を含まない材料を使用して、長時間の操作時の低温やけど等の発症の可能性を低減できる筐体を製造することも出来る。このような筐体は、例えば、筐体を成形するための金型に複数の樹脂注入ゲートを設置し、ゲートごとに異なる組成の樹脂を注入する方法等により製造することが可能である。

実施例

- [0110] 以下、本発明を実施例により更に具体的に説明するが、本発明はその主旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。

なお、実施例および比較例における各種物性は以下の方法により測定した。

- [0111] 〔組成〕

4-メチルー1-ペンテン共重合体（A）中の各構成単位（4-メチルー1-ペンテン及び α -オレフィン）の含有率（モル％）は、 ^{13}C -NMRにより測定した。

- [0112] ・測定装置：核磁気共鳴装置（ECP500型、日本電子（株）製）
・観測核： ^{13}C （125MHz）
・シーケンス：シングルパルスプロトンデカップリング

- ・パルス幅：4.7 μ 秒（45°パルス）
- ・繰り返し時間：5.5秒
- ・積算回数：1万回以上
- ・溶媒：オルトジクロロベンゼン／重水素化ベンゼン（容量比：80／20）

0) 混合溶媒

- ・試料濃度：55 mg／0.6 mL
- ・測定温度：120℃
- ・ケミカルシフトの基準値：27.50 ppm

〔極限粘度 $[\eta]$ 〕

共重合体の極限粘度 $[\eta]$ は、測定装置としてウベローデ粘度計を用い、デカリン溶媒中、135℃で測定した。

[0113] 約20 mgの特定4-メチル-1-ペンテン（4MP1）系共重合体をデカリン25 mLに溶解させた後、ウベローデ粘度計を用い、135℃のオイルバス中で比粘度 η_{sp} を測定する。このデカリン溶液にデカリンを5 mL加えて希釈した後、上記と同様にして比粘度 η_{sp} を測定する。この希釈操作を更に2回繰り返し、濃度（C）を0に外挿した時の η_{sp}/C の値を極限粘度 $[\eta]$ （単位：dL／g）として求める（下記の式1参照）。

[0114] $[\eta] = \lim (\eta_{sp}/C) \quad (C \rightarrow 0) \quad \dots \text{式1}$

〔重量平均分子量（Mw）及び分子量分布（Mw／Mn）〕

共重合体の重量平均分子量（Mw）、及び重量平均分子量（Mw）と数平均分子量（Mn）との比で表される分子量分布（Mw／Mn）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（GPC：Gel Permeation Chromatography）を用いた標準ポリスチレン換算法により算出した。

[0115] ー条件ー

測定装置：GPC（ALC／GPC 150-C plus型、示差屈折計検出器一体型、Waters製）

カラム：GMH6-HT（東ソー（株）製）2本、及びGMH6-HTL

(東ソー(株)製) 2本を直列に接続

溶離液: オージクロロベンゼン

カラム温度: 140℃

流量: 1.0 mL/min

[メルトフローレート (MFR)]

共重合体 (A-1-1) および (A-1-2)、PP、並びに、オレフィン系エラストマーのメルトフローレート (MFR: Melt Flow Rate) は、ASTM D1238に準拠し、230℃で2.16 kgの荷重にて測定した。単位は、g/10 minである。

[0116] [密度]

共重合体の密度は、JIS K7112 (密度勾配管法) に準拠して、測定した。この密度 (kg/m³) を軽量性の指標とした。

[0117] また、樹脂組成物の密度 (g/cm³) は、JIS K7112 (密度勾配管法) に準拠して、測定した。

[融点 (T_m)]

共重合体の融点 (T_m) は、測定装置として示差走査熱量計 (DSC 220C型、セイコーインスツル(株)製) を用いて測定した。約5 mgの重合体を、測定用アルミニウムパン中に密封し、室温から10℃/minで200℃まで加熱する。重合体を完全融解させるために、200℃で5分間保持し、次いで、10℃/minで-50℃まで冷却する。 -50℃で5分間置いた後、10℃/minで200℃まで2度目の加熱を行ない、この2度目の加熱でのピーク温度 (℃) を重合体の融点 (T_m) とする。なお、複数のピークが検出される場合には、最も高温側で検出されるピークを採用する。

[0118] [動的粘弾性]

動的粘弾性の測定では、測定対象とする樹脂または樹脂組成物からなる厚さ3 mmのプレスシートを測定試料として用い、さらに動的粘弾性測定に必要な45 mm×10 mm×3 mmの短冊片を切り出した。ANTON Paar社製MCR 301を用いて、10 rad/s (1.6 Hz) の周波数で-4

0～150℃までの動的粘弾性の温度依存性を測定し、0～40℃の範囲でガラス転移温度に起因する損失正接（ $\tan \delta$ ）がピーク値（最大値）となる際の温度（以下「ピーク値温度」ともいう。）、およびその際の損失正接（ $\tan \delta$ ）の値を測定した。

[0119] 〔タック性〕

タック性の測定では、測定対象とする樹脂または樹脂組成物からなる厚さ0.5mmのキャストシートを測定試料として用い、このキャストシートから、測定に必要な100mm×25mmシートを2枚切り出し、これらのシート同士を2枚重ねて両面をガラス板で挟んだ。その上に10kgの錘を置いて、50℃で3日間静置した。その後、重なったシートを検体シートとして、その長手方向が鉛直方向となる態様で引張試験機に置いて固定した。この検体シートの下端部に、当該検体シートの短手方向に平行にアルミニウム製の丸棒（長さ150mm、直径2mm）を設置し、当該検体シートを構成する2枚のシート間を広げるように23℃で試験速度200mm/min.の速度で丸棒を引き上げることで、2枚のシートを完全に剥がれるまでの間の剥離強度の平均値をもって平均剥離強度とした。

[0120] 〔成形性：成形収縮率〕

成形収縮率は、樹脂組成物からなる130mm×130mm×2mm厚の平板成形体（シート）を測定試料として用いて求めた。ここで、前記平板成形体（シート）の調製は、東芝機械株式会社製の射出成形機 東芝75トンを用いて行った。具体的には、前記射出成形機のホッパー部に樹脂組成物のペレットを投入し、240℃で熔融させ、金型に射出成形することにより行った。ここで、前記射出成形は、金型の温度を15～60℃、射出圧を20～50MPa、保圧を30～40MPaとして行った。得られたシートについての成形収縮率は、金型の長さに対する成形3日後のシートの長さの寸法変化として算出した。具体的には、前記射出成形を行った後シートを金型から外し室温で3日静置した後に、シートの辺の長さとし射出金型の辺の長さとの差を4辺について測定し、当該4辺につき、辺の長さに対する差の割合の

百分率をそれぞれ求め、これらの百分率の平均値を成形収縮率とした。

[0121] 〔機械物性：引張弾性率、引張伸び〕

成形体の引張弾性率(ヤング率)および引張伸びは、ASTM D638 Type 4に準拠したダンベル型成形体試験片を用いて引張試験により測定した。ここで、前記ダンベル型成形体試験片の調製は、前記「成形性：成形収縮率」に記載の方法で得られた130mm×130mm×2mm厚の平板成形体(シート)を打抜くことによって行った。引張試験は、株式会社インテスコ製5本掛け引張試験機 2005X-5を用い、ASTM D638に準拠して23℃において、試験速度50mm/分で行った。

[0122] <合成例1>

<4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1)の合成>

十分に窒素置換した容量1.5Lの攪拌翼付のSUS製オートクレーブに、300mlのn-ヘキサン(乾燥窒素雰囲気下、活性アルミナ上で乾燥したもの)、及び450mlの4-メチル-1-ペンテンを23℃で装入した。このオートクレーブに、トリイソブチルアルミニウム(TIBAL)の1.0mmol/mlトルエン溶液を0.75ml装入し、攪拌機を回した。

[0123] 次に、オートクレーブを内温が60℃になるまで加熱し、全圧(ゲージ圧)が0.40MPaとなるようにプロピレンで加圧した。

続いて、予め調製しておいた、Al換算で1mmolのメチルアルミノキサン、及び0.01mmolのジフェニルメチレン(1-エチル-3-tert-ブチル-シクロペンタジエニル)(2,7-ジ-tert-ブチル-フルオレニル)ジルコニウムジクロリドを含むトルエン溶液0.34mlを、オートクレーブに窒素で圧入し、重合反応を開始させた。重合反応中は、オートクレーブの内温が60℃になるように温度調整した。

[0124] 重合開始から60分後、オートクレーブにメタノール5mlを窒素で圧入し、重合反応を停止させた後、オートクレーブ内を大気圧まで脱圧した。脱圧後、反応溶液に、該反応溶液を攪拌しながらアセトンを添加し、溶媒を含

む重合反応生成物を得た。

[0125] 次いで、得られた溶媒を含む重合反応生成物を減圧下、 100°C で12時間乾燥させて、 36.9 g の粉末状の4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1)(以下、「共重合体A-1-1」)を得た。得られた共重合体A-1-1の各種物性の測定結果を表1に示す。ここで、表1中、「4MP1」とあるのは4-メチル-1-ペンテンを、「AO」とあるのは α -オレフィンをそれぞれ指している。

[0126] 共重合体A-1-1中の4-メチル-1-ペンテンの含有率は $72.5\text{ mol}\%$ であり、プロピレンの含有率は $27.5\text{ mol}\%$ であった。また、共重合体A-1-1の密度は 839 kg/m^3 であった。共重合体A-1-1の極限粘度 $[\eta]$ は 1.5 dl/g であり、重量平均分子量(Mw)は $337,000$ であり、分子量分布(Mw/Mn)は 2.1 であり、メルトフローレート(MFR)は 11 g/10min であった。共重合体A-1-1の融点(Tm)は観測されなかった。

[0127] <4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-2)の合成>

十分に窒素置換した容量 1.5 L の攪拌翼付のSUS製オートクレーブに、 300 ml のn-ヘキサン(乾燥窒素雰囲気下、活性アルミナ上で乾燥したもの)、及び 450 ml の4-メチル-1-ペンテンを 23°C で装入した後、トリイソブチルアルミニウム(TIBAL)の 1.0 mmol/ml トルエン溶液を 0.75 ml 装入し、攪拌機を回した。

[0128] 次に、オートクレーブを内温が 60°C になるまで加熱し、全圧(ゲージ圧)が 0.19 MPa となるようにプロピレンで加圧した。

続いて、予め調製しておいた、Al換算で 1 mmol のメチルアルミノキサン、及び 0.01 mmol のジフェニルメチレン(1-エチル-3-tert-ブチル-シクロペンタジエニル)(2,7-ジ-tert-ブチル-フルオレニル)ジルコニウムジクロリドを含むトルエン溶液 0.34 ml をオートクレーブに窒素で圧入し、重合反応を開始させた。重合反応中は、オートクレーブ

の内温が60℃になるように温度調整した。

[0129] 重合開始から60分後、オートクレーブにメタノール5mlを窒素で圧入し、重合反応を停止させた後、オートクレーブ内を大気圧まで脱圧した。脱圧後、反応溶液に、該反応溶液を攪拌しながらアセトンを添加し、溶媒を含む重合反応生成物を得た。次いで、得られた溶媒を含む重合反応生成物を減圧下、130℃で12時間乾燥させて、44.0gの粉末状の4-メチル-1-ペンテン共重合体(A-1-2)(以下、「共重合体A-1-2」)を得た。得られた共重合体A-1-2の各種物性の測定結果を表1に示す。

[0130] 共重合体A-1-2中の4-メチル-1-ペンテンの含有率は84.1mol%であり、プロピレンの含有率は15.9mol%であった。また、共重合体A-1-2の密度は838kg/m³であった。共重合体A-1-2の極限粘度[η]は1.5dl/gであり、重量平均分子量(Mw)は340,000であり、分子量分布(Mw/Mn)は2.1であり、メルトフローレート(MFR)は11g/10minであった。共重合体A-1-2の融点(T_m)は132℃であった。

[0131] [表1]

表1

			共重合体A-1-1	共重合体A-1-2
組成	4MP1単位の含有率	mol%	72.5	84.1
	AO単位を構成するα-オレフィン種		プロピレン	プロピレン
	AO単位の含有率	mol%	27.5	15.9
極限粘度[η]		dl/g	1.5	1.5
重量平均分子量(Mw)			337000	340000
分子量分布(Mw/Mn)			2.1	2.1
メルトフローレート(MFR)		g/10min	11	11
密度		kg/m ³	839	838
融点(T _m)		℃	観測されず	132
tan δピーク:ピーク温度		℃	30	43
tan δピーク:ピーク値		—	2.78	1.46

<実施例1>

4-メチル-1-ペンテン・α-オレフィン共重合体(A-1-1) 50質量部と、重質炭酸カルシウム(丸尾カルシウム株式会社製「スノーライ

ト s s s」、平均粒子径 8.4 μm ；以下「炭酸カルシウム (B 1-1)」
(50 質量部を混合させ、二次抗酸化剤としての耐熱安定剤としての 3-(4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-tert-ブチルフェニル)プロピオン酸 n-オクタデシルを 0.2 質量部配合した。然る後に、(株)プラスチック工学研究所社製 2 軸押出機 BT-30 (スクリー系 30 mm ϕ 、L/D=46) を用い、設定温度 230°C、樹脂押出量 60 g/min および 200 rpm の条件で造粒してペレット化した。この樹脂組成物を、リップ幅 240 mm の T ダイを設置した 20 mm ϕ の単軸押出機 (単軸シート形成機、(株)田中鉄工所製) のホッパーに投入した。そして、シリンダー温度を 230°C、ダイス温度を 230°C に設定して樹脂組成物を熔融混練し、得られる熔融混練物を T ダイから厚み 500 μm で押し出し、キャストシート成形することにより、実施例 1 のシートを得た。得られたシートの物性評価結果を表 2-1 に示す。

[0132] <実施例 2>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) および炭酸カルシウム (B 1-1) の配合量を、それぞれ 40 質量部および 60 質量部に変更した以外は実施例 1 と同様の方法により実施例 2 の樹脂組成物およびシートを得た。得られたシートの物性評価結果を表 2-1 に示す。

[0133] <実施例 3>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) および炭酸カルシウム (B 1-1) の配合量を、それぞれ 30 質量部および 70 質量部に変更した以外は実施例 1 と同様の方法により実施例 3 の樹脂組成物およびシートを得た。得られたシートの物性評価結果を表 2-1 に示す。

[0134] <実施例 4>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) の代わりに 4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-2) を用いた以外は実施例 2 と同様の方法により実施例 4 の樹脂組成物およびシートを得た。得られたシートの物性評価結果を表 2-1 に示す。

[0135] <実施例5>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1) 50質量部と、重質炭酸カルシウム(株式会社カルファイン製「カルファインKS-1000」、平均粒子径24.2 μ m;以下「炭酸カルシウム(B1-2)」) 50質量部を混合させ、二次抗酸化剤としての耐熱安定剤としての3-(4'-ヒドロキシ-3', 5'-ジ-*t*-ブチルフェニル)プロピオン酸*n*-オクタデシルを0.2質量部配合した。然る後に、(株)プラスチック工学研究所社製2軸押出機BT-30(スクリー系30mm ϕ 、L/D=46)を用い、設定温度230℃、樹脂押出量60g/minおよび200rpmの条件で造粒してペレット化した。この樹脂組成物を、リップ幅240mmのTダイを設置した20mm ϕ の単軸押出機(単軸シート形成機、(株)田中鉄工所製)のホッパーに投入した。そして、シリンダー温度を230℃、ダイス温度を230℃に設定して樹脂組成物を熔融混練し、得られる熔融混練物をTダイから厚み500 μ mで押し出し、キャストシート成形することにより、実施例5のシートを得た。

[0136] 得られたシートおよび試験片による物性評価結果を表2-2に示す。

<実施例6>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1)および炭酸カルシウム(B1-2)の配合量を、それぞれ40質量部および60質量部に変更した以外は実施例5と同様の方法により実施例6の樹脂組成物およびシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表2-2に示す。

[0137] <実施例7>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1)および炭酸カルシウム(B1-2)の配合量を、それぞれ30質量部および70質量部に変更した以外は実施例5と同様の方法により実施例7の樹脂組成物およびシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表2-2に示す。

[0138] <実施例 8>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) の代わりに4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-2) を用いた以外は実施例 6 と同様の方法により実施例 8 の樹脂組成物およびシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表 2-3 に示す。

[0139] <実施例 9>

前記炭酸カルシウム (B 1-2) を硫酸バリウム (堺化学工業株式会社、平均粒子径 10.0 μm ; 以下「硫酸バリウム (B 2-1)」) に代えるとともに、4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) および硫酸バリウム (B 2-1) の配合量を、それぞれ 30 質量部および 70 質量部とした以外は、実施例 5 と同様の方法により実施例 9 の樹脂組成物およびシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表 2-3 に示す。

[0140] <実施例 10>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) および炭酸カルシウム (B 1-2) の配合量を、それぞれ 36 質量部および 54 質量部に変更するとともに、さらに、その他の樹脂 (C) としてオレフィン系エラストマー (三井化学株式会社製タフマー PN 2060、融点 162 $^{\circ}\text{C}$ 、MFR 6 g/10 min) を 10 質量部配合させた以外は、実施例 5 と同様の方法により実施例 10 の樹脂組成物およびシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表 2-3 に示す。

[0141] <比較例 1>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体 (A-1-1) を 100 質量部用い、炭酸カルシウムは配合しなかった以外は実施例 1 と同様の方法により比較例 1 のシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表 2-4 に示す。

[0142] <比較例 2>

4-メチル-1-ペンテン・ α -オレフィン共重合体(A-1-1)および炭酸カルシウム(B1-1)の配合量を、それぞれ90質量部および10質量部に変更した以外は実施例1と同様の方法により比較例2のシートおよび試験片を得た。得られたシートおよび試験片の物性評価結果を表2-4に示す。

[0143] <比較例3>

炭酸カルシウムに代えて、その他の樹脂(C)として、ポリプロピレン(プライムポリマー株式会社製 商品名プライムポリプロ(登録商標)F107)60質量部を用いた以外は実施例2と同様の方法により比較例3のシートおよび試験片を得た。得られたシートの物性評価結果を表2-4に示す。

[0144]

[表2-1]

表 2 - 1

					実施例 1	実施例2	実施例3	実施例4
成形体 構成	熱可塑性樹脂（A）	共重合体 A-1-1	質量部	50 <50> (100)	40 <40> (100)	30 <30> (100)	—	
		共重合体 A-1-2		—	—	—	40 <40> (100)	
		小計		50 <50> (100)	40 <40> (100)	30 <30> (100)	40 <40> (100)	
	無機物（B）	炭酸カルシウム B1-1		50 <50> (100)	60 <60> (150)	70 <70> (233)	60 <60> (150)	
		炭酸カルシウム B1-2		—	—	—	—	
		硫酸バリウム B2-1		—	—	—	—	
	小計			100 <100> (200)	100 <100> (250)	100 <100> (333)	100 <100> (250)	
	その他の樹脂（C）	PP		—	—	—	—	
		オレフィン系 エラストマー		—	—	—	—	
	合計			100 <100> (200)	100 <100> (250)	100 <100> (333)	100 <100> (250)	
軽量性	密度		g/cm ³	1.22	1.43	1.67	1.44	
応力吸収性	tanδピーク	ピーク温度	℃	30	30	30	42	
		ピーク値	—	2.36	2.20	1.94	1.10	
タック性	平均剥離強度		N/cm	0.4	0.1	1.2	0.1	
成形性	成形収縮率		%	4.4	3.6	2.2	2.8	
機械物性	引張弾性率		MPa	454	837	1193	1420	
	引張伸び		%	254	252	230	196	

(註：括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) の合計量 (「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。山括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) と無機物 (B) との合計量 (第2の「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。)

[0145]

[表2-2]

表 2 - 2

				実施例5	実施例6	実施例7
成形体 構成	熱可塑性樹脂（A）	共重合体 A-1-1	質量部	50 <50> (100)	40 <40> (100)	30 <30> (100)
		共重合体 A-1-2		—	—	—
		小計		50 <50> (100)	40 <40> (100)	30 <30> (100)
	無機物（B）	炭酸カルシウム B1-1		—	—	—
		炭酸カルシウム B1-2		50 <50> (100)	60 <60> (150)	70 <70> (233)
		硫酸バリウム B2-1		—	—	—
	小計			100 <100> (200)	100 <100> (250)	100 <100> (333)
	その他の樹脂（C）	PP		—	—	—
		オレフィン系 エラストマー		—	—	—
	合計			100 <100> (200)	100 <100> (250)	100 <100> (333)
軽量性	密度		g/cm ³	1.22	1.45	1.60
応力吸収性	tanδピーク	ピーク温度	℃	30	31	32
		ピーク値	—	2.36	2.27	2.04
タック性	平均剥離強度		N/cm	0.4	0.1	1.2
成形性	成形収縮率		%	4.4	3.6	2.2
機械物性	引張弾性率		MPa	653	857	1203
	引張伸び		%	270	249	231

(注：括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) の合計量 (「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。山括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) と無機物 (B) との合計量 (第2の「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。)

[0146]

[表2-3]

表 2 - 3

				実施例8	実施例9	実施例10
成形体 構成	熱可塑性樹脂（A）	共重合体 A-1-1	質量部	—	30 <30> (100)	36 <40> (100)
		共重合体 A-1-2		40 <40> (100)	—	
		小計		40 <40> (100)	30 <30> (100)	36 <40> (100)
	無機物（B）	炭酸カルシウム B1-1		—	—	—
		炭酸カルシウム B1-2		60 <60> (150)	—	54 <60> (150)
		硫酸バリウム B2-1		—	70 <70> (233)	—
	小計			100 <100> (250)	100 <100> (333)	90 <100> (250)
	その他の樹脂（C）	PP		—	—	—
		オレフィン系 エラストマー		—	—	10 <11> (28)
	合計			100 <100> (250)	100 <100> (333)	100 <111> (278)
軽量性	密度		g/cm ³	1.44	1.70	1.39
応力吸収性	tanδピーク	ピーク温度	℃	42	31	29
		ピーク値	—	1.10	2.22	1.35
タック性	平均剥離強度		N/cm	0.1	1.1	1.3
成形性	成形収縮率		%	2.8	2.6	4.1
機械物性	引張弾性率		MPa	1420	668	165
	引張伸び		%	196	201	320

(注：括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) の合計量 (「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。山括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) と無機物 (B) との合計量 (第2の「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。)

[0147]

[表2-4]

表 2 - 4

				比較例 1	比較例2	比較例3
成形体 構成	熱可塑性樹脂（A）	共重合体 A-1-1	質量部	100 <100> (100)	90 <90> (100)	40 <100> (100)
		共重合体 A-1-2		—	—	—
		小計		100 <100> (100)	90 <90> (100)	40 <100> (100)
	無機物（B）	炭酸カルシウム B1-1		—	10 <10> (11)	—
		炭酸カルシウム B1-2		—	—	—
		硫酸バリウム B2-1		—	—	—
	小計			100 <100> (100)	100 <100> (111)	40 <100> (100)
	その他の樹脂（C）	PP		—	—	60 <150> (150)
		オレフィン系 エラストマー		—	—	—
	合計			100 <100> (100)	100 <100> (111)	100 <250> (250)
軽量性	密度		g/cm ³	0.84	0.91	0.88
応力吸収性	tanδピーク	ピーク温度	℃	30	30	23
		ピーク値	—	2.80	2.70	0.25
タック性	平均剥離強度		N/cm	27.5	19.0	0.5
成形性	成形収縮率		%	14.0	13.1	3.3
機械物性	引張弾性率		MPa	184	249	987
	引張伸び		%	394	321	232

(注：括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) の合計量 (「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。山括弧付きの斜体で表された質量部の値は、熱可塑性樹脂 (A) と無機物 (B) との合計量 (第2の「小計」に記載の量) を100質量部としたときの値である。)